

# BEST AVAILABLE COPY

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-028474

(43)Date of publication of application : 29.01.2002

(51)Int.Cl.

B01J 19/00  
C04B 35/626  
C09K 11/08  
C09K 11/64  
// C01F 7/16

(21)Application number : 2000-232724

(71)Applicant : MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD

(22)Date of filing : 01.08.2000

(72)Inventor : OSHIO SHOZO

(30)Priority

Priority number : 2000136193

Priority date : 09.05.2000

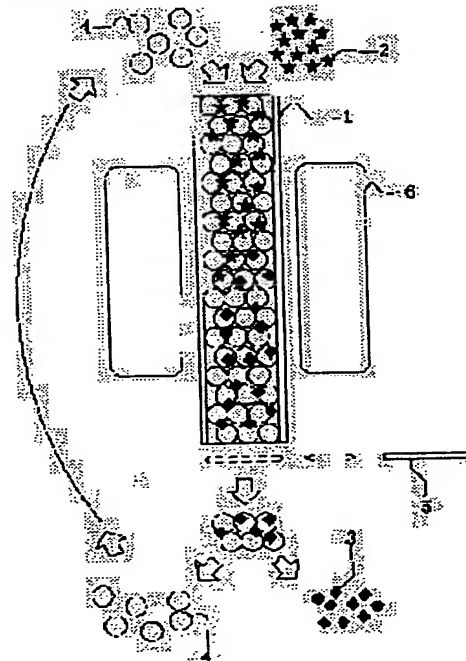
Priority country : JP

**(54) METHOD FOR MANUFACTURING INORGANIC COMPOUND POWDER**

(57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a method for manufacturing inorganic compound powder by which continuous treatment at high temperature can be executed in a tubular furnace core body of a vertical axis or an inclined axis capable of reducing an installation area of a manufacturing device.

**SOLUTION:** A compound raw material for inorganic compound powder together with a carrier for giving fluidity to the compound raw material are charged into a furnace core tube of the vertical axis or the inclined axis and the compound raw material and the carrier are subjected to synthesis by heating while being moved downward in the furnace core tube.

**LEGAL STATUS**

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision  
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-28474

(P2002-28474A)

(43) 公開日 平成14年1月29日 (2002.1.29)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テマコード <sup>*</sup> (参考)
B 0 1 J 19/00		B 0 1 J 19/00	N 4 G 0 3 0
C 0 4 B 35/626		C 0 9 K 11/08	B 4 G 0 7 5
C 0 9 K 11/08		11/64	CPM 4 G 0 7 6
11/64	CPM	C 0 1 F 7/16	4 H 0 0 1
// C 0 1 F 7/16		C 0 4 B 35/00	A
審査請求 未請求 請求項の数10 O L (全 11 頁)			

(21) 出願番号 特願2000-232724(P2000-232724)

(22) 出願日 平成12年8月1日 (2000.8.1)

(31) 優先権主張番号 特願2000-136193(P2000-136193)

(32) 優先日 平成12年5月9日 (2000.5.9)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000005821

松下電器産業株式会社

大阪府門真市大字門真1006番地

(72) 発明者 大塩 祥三

大阪府高槻市幸町1番1号 松下電子工業  
株式会社内

(74) 代理人 100083172

弁理士 福井 豊明

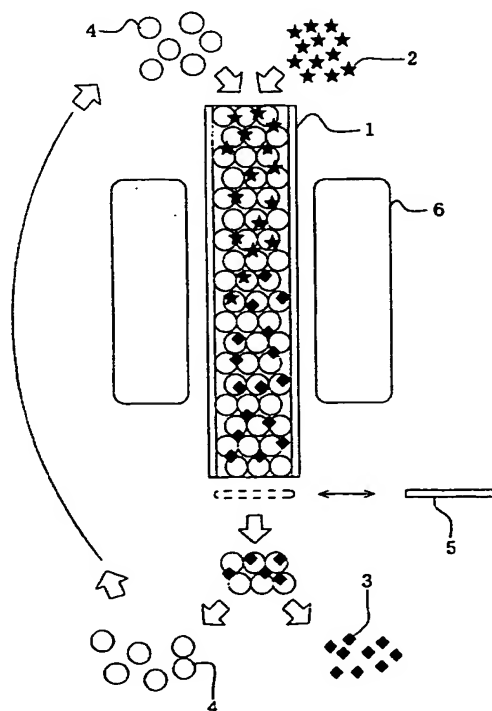
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 無機化合物粉末の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 製造設備の敷設平面積を狭くできる縦軸又は傾斜軸の管状炉心体で高温での連続処理ができるようにした無機化合物粉末の製造方法を提供する。

【解決手段】 縦軸又は傾斜軸の炉心管に無機化合物粉末の化合物原料とともに、該化合物原料に流動性を与えるキャリアを投入し、これら化合物原料及びキャリアを前記炉心管内で下方に移動させながら、加熱合成する。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 化合物原料を加熱合成して得る、無機化合物粉末の製造方法であって、縦軸又は傾斜軸の炉心管に化合物原料とともに、該化合物原料に流動性を与えるキャリアを投入し、これら化合物原料及びキャリアを前記炉心管内で下方に移動させながら、加熱合成することを特徴とする無機化合物粉末の製造方法。

【請求項 2】 上記無機化合物粉末の中心粒径が、 $0.01\mu\text{m}$ 以上 $100\mu\text{m}$ 以下である請求項 1 に記載の無機化合物粉末の製造方法。

【請求項 3】 上記無機化合物粉末を加熱合成した後、キャリアを無機化合物粉末と分離し、炉心管に投入して再利用する請求項 1 又は 2 に記載の無機化合物粉末の製造方法。

【請求項 4】 上記キャリアは、 $10\mu\text{m}$ 以上 $100\text{m}$ 以下の中心粒径を有するセラミックスである請求項 3 に記載の無機化合物粉末の製造方法。

【請求項 5】 上記キャリアは、 $10\mu\text{m}$ 以上 $100\text{m}$ 以下の中心粒径を有する高融点導電体である請求項 3 に記載の無機化合物粉末の製造方法。

【請求項 6】 高周波誘導加熱により上記キャリアを発熱させ、該キャリアに化合物原料を加熱させる請求項 5 に記載の無機化合物粉末の製造方法。

【請求項 7】 上記キャリアは、さらに球体である請求項 4 又は 6 に記載の無機化合物粉末の製造方法。

【請求項 8】 上記化合物原料として蛍光体原料を用いて蛍光体粉末を製造する請求項 7 に記載の無機化合物粉末の製造方法。

【請求項 9】 融点が $1800^\circ\text{C}$ を超える高融点無機化合物粉末を製造する請求項 7 に記載の無機化合物粉末の製造方法。

【請求項 10】 最高加熱温度が $1900^\circ\text{C}$ 以上 $3500^\circ\text{C}$ 以下の炉を用いることを特徴とする請求項 9 に記載の無機化合物粉末の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、蛍光体粉末などの高温加熱合成により製造される無機化合物粉末の製造方法に係り、特に製造設備の敷設平面積を狭くできる縦軸又は傾斜軸の管状炉心体で高温での処理温度の連続処理ができるようにした無機化合物粉末の製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】従来、例えば蛍光体粉末は、出発原料を混合する混合工程と、上記出発原料を化学反応させて蛍光体粉末を合成する反応工程を含む製造方法が広く用いられている。又、蛍光体粉末の量産には、電気炉やガス炉、とりわけトレイブッシャ型連続炉、垂直引下げ炉、シャフト型連続炉などの $1\text{kg}$ /時間以上の製造能力を有する量産炉を用いる方法により量産がなされている。

【0003】例えば、図 3 の平面図、及び図 4 に示すトレイブッシャ型連続炉を用いる無機化合物粉末の製造方法では、ストックヤード部 8 のコンベア（ストックヤードコンベア）9 上に原料粉末や反応促進剤を入れたアルミナからなるトレイ 7 を並べ、搬入中間扉 15 を閉じた搬入ベスチブル 10 に上記トレイ 7 を一つずつ入れ、搬入扉 14 を閉じる。この後、搬入ベスチブル 10 内の雰囲気（雰囲気）を炉本体 11 内の雰囲気と同じにしてから、上記搬入中間扉 15 を開き、上記コンベア（搬入コンベア）9 でトレイ 7 を搬入ベスチブル 10 より炉本体 11 内に送り込む。

【0004】上記炉本体 11 内に送り込まれた上記トレイ 7 は、スキッドレール 28 上をこのスキッドレール 28 に沿って炉本体内に送り込まれ、搬入ブッシャ 21 で上記炉本体 11 の反対側に押され、先に炉本体 11 内に入れられたトレイ 7 を該炉本体 11 の反対側に押す。これの前に、またはこれと同時に、もしくはこれの後に、搬入中間扉 15 を閉じ、密閉された搬入ベスチブル 10 内を浄化してから、搬入扉 14 を開いて以上の操作を繰り返すと、スキッドレール 28 上に上記トレイ 7 が上記炉本体 11 の搬入ベスチブル 10 の後ろ側から反対側まで数珠繋ぎに連なり、各トレイ 7 は順に炉本体 11 の徐熱帯 22、加熱帯 23、徐冷帯 24、冷却帯 25 を通過することになる。

【0005】上記各トレイ 7 に仕込まれた化合物原料は、徐熱帯 22 と加熱帯 23 を通過する間に加熱合成されて、目的とする無機化合物粉末になり、徐冷帯 24 と冷却帯 25 を通過する間に室温近くまで冷却される。加熱処理を終えて上記炉本体 11 の反対側に到達したトレイ 7 は、搬出扉 17 を閉じた状態の搬出ベスチブル 13 に搬出ブッシャ 12 によって押し出される。

【0006】上記トレイ 7 が搬出ベスチブル 13 に押し込まれた後、搬出中間扉 16 を閉じてから、搬出ベスチブル 13 内を浄化し、さらにこの後、排出扉 17 を開いてコンベア（搬出コンベア）9 によりトレイ 7 を搬出ベスチブル 13 から搬出し、ストックヤード部 8 のところで取り出す。

【0007】なお、前記コンベア（ストックヤードコンベア、搬入用コンベア、搬出用コンベア）9 には、ローラーコンベアなどが用いられる。

【0008】なお、図 4 の縦断面図に示すように、上記スキッドレール 28 は炉本体 11 内の全長にわたって設けられ、又、炉本体 11 の加熱帯 23 には、炉本体 11 内に並ぶトレイ 7 の上下に加熱手段（ヒーター）27 が設けられる。そして、熱効率を高めるとともに、コンベア 9 と炉本体 11 の間に配置された制御パネル 18 や、周囲の人をこの加熱手段 27 の発熱から保護するため、この加熱帯 23 とその前後の徐熱帯 22 及び徐冷帯 24 にわたって炉本体 11 の内外は断熱材 19 と、ウオータージャケット 20 とで区画している。

【0009】このトレイブッシャ型連続炉を用いる従来の無機化合物製造方法においては、該トレイブッシャ型連続炉の大きさが、加熱処理材の処理量によって異なるものの幅3m～100m、奥行1m～20m程度の炉が一般的であり敷設面積がかなり広いという問題がある。また、敷設面積が広いが故に、放熱しやすく、さらに熱効率を悪いものであるため、1800℃以上の高温での稼働が困難である。また、蛍光体原料（化合物原料）を仕込んだトレイが、とりわけ1500℃以上の高温での焼成や、徐熱あるいは徐冷の際の温度変化によって破損するなどの課題もあった。このため、無機化合物粉末の一種に含まれる蛍光体粉末の、従来の製造方法にあっては、量産炉の最高加熱温度は、通常、先に説明した高熔点無機化合物粉末（アルミネート蛍光体粉末）の熔点よりも低い、1800℃以下に抑えられ、熔点が1800℃を越える高熔点無機化合物粉末（アルミネート蛍光体粉末など）の量産にあたっては、量産炉の最高加熱温度付近に温度設定し、加熱合成時間を長くするなど措置がなされている。

【0010】このため、アルミネート蛍光体粉末に代表される1800℃を越える熔点を有する高熔点無機化合物粉末の製造方法にあっては、量産炉の最高加熱温度が高熔点無機化合物粉末の熔点よりも低いために、高品質かつ高性能の無機化合物粉末を量産するためには、量産炉の装置性能をフルに発揮させなければならない。そして、このように装置性能の限界近くで量産炉を操作しなければならないために、炉本体、炉心管、ヒーターなどの量産炉を構成する部材が、消耗あるいは破損しやすく、メンテナンス頻度が多くなり、労力がかかる上、蛍光体粉末の製品歩留まりが悪くなる。

【0011】しかも、量産炉を構成する絶縁体の抵抗率が高温の加熱温度によって低抵抗化し、ヒーターに通電する電力が漏電して電力ロスが多くなり、消費電力が多くなるために、結果として製品（蛍光体粉末）の製造コストが高くなるという課題があった。

【0012】また、蛍光体粉末の量産では、上述した連続炉のほかに、蛍光体粉末の原料を混合する混合装置、焼成後の蛍光体粉末を解砕する解砕装置、解砕後の蛍光体粉末を分級する、ふるい分け装置などの分級装置、分級後の蛍光体粉末を洗浄する洗浄装置、洗浄後の蛍光体粉末を乾燥する乾燥装置などが設けられる。

【0013】図5、図6、図7に示す垂直引下げ炉を用いる従来の無機化合物粉末の製造方法では、搬入ベスチバルを経て、化合物原料を仕込んだトレイ7が炉心管1に上から投入される。炉本体11の上半部が加熱帯23とされ、下半部が冷却帯25とされ、例えばモリブデンヒーターからなる加熱装置27は加熱帯23の範囲内で昇降しながら、前記混合物を加熱するようにしている。この加熱が終わると、炉心管1の下端に設けた引下げ機構40で冷却帯25内のトレイ7を次々に引き下げて取

り出す。冷却帯25のトレイ7を取り出す間に加熱帯23内のトレイ7は順に冷却帯25に下がり、加熱帯23には次々と化合物原料を仕込んだ新しいトレイ7が仕込まれる。

【0014】なお、前記引下げ機構40は図6の縦断面図に示すように、炉心管1の下端とそこを通過するトレイ7との間を気密状に封止するゴムパッキン42の下方に配置され、図6の縦断面図、及び図7の横断平面図に示すように、傾斜軸心の周りに回転しながら、炉心管1から引き下げるトレイ7の外面に転接する3本の鋼ローラ41を備えている。

【0015】この垂直引下げ炉は、炉心管1が縦軸であるので、トレイブッシャ型連続炉に比べて、設置面積、及び熱効率の面でも有利である。しかし、トレイ7を用いるが故に1800℃を上回る高温処理ができないという問題があり。また、構造が複雑化すると共に焼成以外の処理が多く、さらにバッチ処理であるため製造効率の悪いものである。

【0016】更に、図8の縦断面図に示すシャフト型連続炉は、設置面積がトレイブッシャ型連続炉よりも狭いので、トレイブッシャ型連続炉よりも設置面積、及び熱効率面で有利である。又、トレイを用いないので、トレイブッシャ型連続炉や垂直引下げ炉よりも高温で処理することができる。さらに、構造も上記垂直引下げ炉より簡易であり、炉への原料の投入から目的とする物質を得るまでの処理も容易であると共に連続処理であるために製造効率が高い。

【0017】上記シャフト型連続炉では、受入ホッパー29に化合物原料2を投入し、フィーダー30を経てフィーダー室31に上記化合物原料2を一時貯蔵する。化合物原料2はこのフィーダー室31から加熱炉本体11の炉心管1内に自重落下し、この炉心管1内に充填する。この加熱炉本体11には上から順に連続する徐熱帯22、加熱帯23、及び徐冷帯24が設けられ、この徐冷帯24の下にさらに連続して冷却帯25が設けられる。上記炉心管1は、これら徐熱帯22、加熱帯23、徐冷帯24及び冷却帯25を垂直に貫通するように設けられ、上記フィーダー室31から炉心管1内に投下された化合物原料2は、徐熱帯22を通り、加熱帯23で加熱合成されて無機化合物になる。

【0018】加熱合成された上記無機化合物は、徐冷帯24及び冷却帯25を通る間に冷却され、炉心管1の下端に気密状に接続された切り出し室32より取り出される。この切り出し室32内には、炉本体11の下端開口を開閉するスライドシャッターからなる切出装置36が設けられ、この切出装置36により切り出し室32内に切出された無機化合物粉末3は、炉本体11の下端開口を切出装置36で閉じてから粉体遮断弁38を開くことにより粉体抽出口37から排出される。

【0019】なお、前記フィーダー室31の周壁には水

冷パイプ35を配置して、炉本体11の熱によりフィーダー室31内の化合物原料2が加熱されないようにしている。炉本体11の加熱帯23には炉心管1を取り巻くヒーター27が設けられ、このヒーター27の周囲に断熱材19が設けられ、これらヒーター27、水冷ジャケット、及び断熱材19を昇降させながらヒーター27を作動させることにより、加熱帯23に滞留している化合物原料2が均等に加熱合成されて無機化合物となる。

#### 【0020】

【発明が解決しようとする課題】しかし、上記シャフト型連続炉を用いる無機化合物粉末の製造方法では、粉径が極めて小さい原料を用いるところから、原料の流動性が悪くなり、処理温度が高くなると被処理物が炉内で塊となって焼結してしまい取り出せなくなることがある。とりわけ1800℃を越える融点を有する高融点無機化合物粉末（アルミネート蛍光体粉末など）の製造方法や、特開平9-151372号公報に開示されるような $AlF_3$ などの反応促進剤を用いない1600℃以上の高温で焼成する蛍光体粉末の製造方法や、反応促進剤を用いる蛍光体粉末の製造方法や、例えば、特開平10-53760号公報に開示されるような、粒子状の酸化アルミニウムを蛍光体原料（化合物原料）の一部に用いる蛍光体粉末（無機化合物粉末）の製造方法において顕著に認められ、こうした課題への対策が求められていた。

【0021】さらには、近年の地球環境問題から、設備の省エネ、省資源化が図られる中、いっそう環境に配慮した量産炉や、化合物粉末量産設備が求められている。すなわち、無機化合物粉末の合成に際して使用する使用材料の少量化、排出材料のリサイクル、リユース化や、コンパクトで排出物が少なく、エネルギー消費量がより少ない量産炉や無機化合物粉末量産設備が求められている。

【0022】なお、各種酸化物（ $MgAl_2O_4$ など）、窒化物（ $AlGaN$ や $SiAlON$ など）、ハロゲン化物（ $BaFCI$ など）、炭化物（ $(Ta, Nb)C$ など）などの蛍光体粉末以外の無機化合物粉末も、上述した蛍光体粉末と同様もしくは同一の製造方法が用いられ、同様の課題を抱えている。

【0023】本発明は、これらの従来技術の課題を解決し、製造設備の敷設平面積を狭くできる縦軸又は傾斜軸の管状炉心体で高温での連続処理ができるようにした無機化合物粉末の製造方法を提供することを目的とする。

#### 【0024】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するために、本発明の無機化合物粉末の製造方法は、化合物原料を加熱合成して得る、無機化合物粉末の製造方法であって、縦軸又は傾斜軸の炉心管に化合物原料とともに該化合物原料の流動性を与えるキャリアを投入し、これら化合物原料及びキャリアを前記炉心管内で下方に移動させ

ながら、加熱合成することを特徴とする。

【0025】本発明によれば、化合物原料と該化合物原料に流動性を与えるキャリアとを炉心管に投入するので、特にキャリアが化合物原料よりも大きい場合、キャリアの隙間よりも大きく焼結することはない。又、化合物原料とキャリアとを取り出すときにキャリアの流動性が良いので、当該キャリアと化合物原料との混合物が自重で流動して落下し（流動落下し）、キャリアが焼結した無機化合物を破碎したり、さらに無機化合物が互いに衝突するキャリアの間に挟まれて破碎されたりするので、縦軸または傾斜軸の炉心管でも無機化合物が炉心管内で焼結して、詰まることはない。

【0026】また、加熱合成後には、キャリアの表面にいくらかの無機化合物が付着するが、キャリアの表面に付着した無機化合物は、振動や衝撃を与えることにより簡単にキャリアから剥離し、キャリアと衝突したり、キャリアの間に挟まれたりして解砕又は破碎される。このようにして無機化合物が細かく破碎される結果、分散性が良好で、粒度分布がシャープな無機化合物粉末を得ることもできるようになる。

【0027】本発明により得ることができる無機化合物粉末としては、セラミックス材料や蛍光体粉末として用いられる各種酸化物（ $MgAl_2O_4$ など）、窒化物（ $AlGaN$ や $SiAlON$ など）、ハロゲン化物（ $BaFCI$ など）、炭化物（ $(Ta, Nb)C$ など）など、あらゆる無機化合物粉末がある。

【0028】これら無機化合物粉末の粒径は、特に限定されないが、本発明によれば、 $0.01\mu m$ 以上 $100\mu m$ 以下の中心粒径を有する、粒状もしくは粉末状の化合物粒子の集合体である無機化合物粉末を好適に得ることができる。

【0029】上記無機化合物の例として、擬球状の粒子を集合してなるアルミネート蛍光体粉末の粒子サイズ分布は、均一であればあるほど、取扱が容易で緻密な蛍光膜が作製できるので好ましく、その粒子サイズは $0.1\mu m$ 以上 $100\mu m$ 以下とされる。好ましくは $0.4\mu m$ 以上 $20\mu m$ 以下とされ、さらに好ましくは $1\mu m$ 以上 $10\mu m$ 以下とされる。最も好ましくは、量産した蛍光体粉末が蛍光ランプやプラズマディスプレイなどの蛍光体応用機器に適する粒子サイズである $2\mu m$ 以上 $8\mu m$ 以下とされる。

【0030】本発明は、上述したように、化合物原料とともにキャリアを縦軸又は傾斜軸の炉心管内に投入することに大きな特徴があり、投入の方法としては化合物原料とキャリアとの混合物をそのまま投入する方法、互いに分離された化合物原料とキャリアとをそのまま同時に又は交互に投入する方法などの方法を採用することができる。

【0031】炉心管に投入される化合物原料及びキャリアは、炉心管内の雰囲気乱さないようにして、炉心管

に導入する必要がある、このためには、例えば従来のシャフト型連続炉を用いて、受入ホッパーに前記混合物を受け入れて必要に応じて脱気させ、次に、フィーダー室に一時貯留し、フィーダー室内の雰囲気を炉心管内の雰囲気と同じにしてから、前記混合物をフィーダー室から炉心管に投下するという方法を採用すればよい。

【0032】ここで、前記受入ホッパーには、化合物原料などの粉体を投入する粉体投入口と、化合物原料などの粉体をフィーダー室に排出する粉体排出口とが設けられるとともに、外気を遮断するために前記粉体投入口を10 開閉する弁と、フィーダー室と空間的に分離するために前記粉体排出口を開閉する別の弁が設けられる。そして、前記粉体排出口の弁を閉じ、粉体投入口の弁を開いて化合物原料などの粉体を受入ホッパーに投入した後、粉体投入口の弁を閉じ、必要に応じて外周部やホッパー内に設けたヒーターを作動させて脱気することができる。

【0033】フィーダー室にも、基本的には、外気を遮断する構造を備えさせ、前記受入ホッパーの前記粉体排出口の弁により受入ホッパーと空間的に分離するとともに、別の弁を介してフィーダー室内を排気したり、各種20 雰囲気ガスに置換したり、真空や減圧雰囲気にしたりすることができる構造が採用される。

【0034】なお、フィーダー室の周囲に水冷ジャケットを設けて、化合物原料を加熱処理あるいは加熱合成する際に、フィーダー室の加熱を防止できるようにしたり、フィーダー室の周囲に粉体を加熱するためのヒーター（図示せず）などを設けて、フィーダー室ないの粉体を脱気できるようにしたりすることもできる。

【0035】なお、炉本体内の加熱雰囲気は、前記大30 気、窒素、還元雰囲気、不活性ガス雰囲気、硫化ガス雰囲気、真空雰囲気、減圧雰囲気等の中から選ばれる。

【0036】前記炉心管は、炉本体内で化合物原料ないし加熱合成された無機化合物粉末とキャリアとの混合物の移動を案内するものであり、耐熱性を有し、かつ、滑り性の良好なセラミックスや金属板やグラファイトなどで構成されている。

【0037】炉本体内で化合物原料とキャリアとの混合物を加熱合成する方法としては、加熱炉本体に徐熱帯、加熱帯、徐冷帯及び冷却帯を順に連続するように設け、化合物原料とキャリアとの混合物を、徐熱帯を通る間に加熱帯から伝達された熱により加熱し、加熱帯を通る間にさらに加熱して化合物原料より無機化合物を合成し、加熱合成された無機化合物とキャリアとの混合物を、徐冷帯を通る間に徐々に冷却し、冷却帯を通過する間にさらに冷却し、室温近くまで冷却された混合物を炉本体から取り出す方法がある。

【0038】炉本体内で化合物原料とキャリアとの混合物を加熱合成する他の方法としては、加熱炉本体を加熱帯と冷却帯とで構成し、ヒーターを加熱帯の範囲内で往

復移動しながら加熱帯内の化合物原料を加熱し、無機化合物を合成した後、一旦ヒーターを停止し、ある程度加熱帯内の無機化合物が冷却されてから、加熱帯内の混合物を冷却帯に自重で流動落下させ、冷却帯で室温近くまで冷却した後に加熱炉本体からその下方に流動落下させる方法を採用することも可能である。

【0039】また、常に炉心管内を上記キャリアが充填する状態で、化合物原料とともに上記キャリアを炉心管内で流動落下させ、この化合物原料を炉心管内で加熱合成して無機化合物粉末を製造する無機化合物粉末の製造方法にあっては、炉心管を二重構造や三重構造などの複10 合構造にしたり、肉厚、内径、炉心管の長さなどを適宜選択したりして必要な強度を確保し、徐熱・加熱・徐冷中の炉心管の破損を防止することが好ましい。また、炉心管の加熱領域部の体積を小さくして、省電力化や加熱温度の均一化を図ることが好ましく、これらの観点から、炉心管の肉厚は2mm以上20cm以下好ましくは3mm以上10cm以下、最も好ましくは、5mm以上5cm以下の厚みとし、炉心管の内径は10mm以上500mm以下、好ましくは20mm以上400mm以下、最も好ましくは40mm以上300mm以下とし、炉心管の長さは、30cm以上20m以下、好ましくは50cm以上10m以下、最も好ましくは1m以上8m以下とされる。

【0040】加熱帯に設けられる加熱手段は、化合物原料などの加熱処理物を加熱するためのものであり、例えば金属ヒーター（カンタルヒーター、白金ヒーター、タ15 ンタル系ヒーター、モリブデン系ヒーター、タングステン系ヒーターなど）や非金属ヒーター（ $\text{MoSi}_2$  ヒーター、ジルコニアヒーター、カーボンヒーターなど）などの発熱体が用いられる。又、加熱手段としてはこれら各種電気ヒーターの他にガス炎や熱線の発生装置、高周波誘導加熱装置など、あらゆる加熱装置や熱線の発生装置を加熱手段として採用することが可能である。

【0041】これら発熱体の最高使用温度は、タングステン系ヒーターでは2000℃、モリブデン系ヒーターでは2100℃、タングステン系ヒーターでは2500℃、 $\text{MoSi}_2$  ヒーターでは1900℃、ジルコニアヒーターでは2000℃、カーボンヒーターでは3000℃程度20 である。

【0042】なお、上記カーボンヒーターは、抵抗が小さいので、円管にらせん状の溝を刻むなどして電気的な行路を長くして用いられ、また、高温では酸化し易いので、真空中や不活性ガス雰囲気中で発熱する構造にして使用される。また、タングステン系ヒーター、モリブデン系ヒーター、タングステン系ヒーターなどの高融点金属発熱体も、高温では酸化されやすいので、真空中や不活性ガス中、還元性気体中で発熱する構造にして使用される。

【0043】加熱装置として高周波誘導加熱装置を用い



ると、キャリアの表面に誘導電流を生ぜしめキャリアの抵抗発熱により化合物原料を加熱することができるので、ランニングコストを削減する上で有利になる。また、このキャリアの発熱によってキャリアの抵抗が低下すると、キャリア表面を電流が流れ易くなりいっそう発熱が促進される。この誘導電流によるキャリアの発熱は比較的導電性の低いセラミックスからなるキャリアでも認められるが、白金に代表される金属やカーボンなどの高融点導電体からなるキャリアを用いると非常に顕著になる。

【0044】炉本体内の最高加熱温度（可動温度）は、1900℃以上3500℃以下になるよう構成するのが好ましい。1900℃よりも量産炉の最高加熱温度が低いと、融点が1800℃を越える高融点の無機化合物製造の際に、炉本体内の最高加熱温度に近い、或いは最高加熱温度を超えた温度で量産炉を稼働させなければならず、該量産炉を構成する部材が消耗や破損しやすくなる上、量産炉の消費電力が多くなるので好ましくない。また、炉本体内の最高加熱温度が3500℃よりも高いと、量産炉のエネルギー効率（量産炉に投入する電力当たりの生産量）が悪くなるので好ましくない。より好ましくは1900℃以上3000℃以下とされ、最も好ましくは1900℃以上2500℃以下の量産炉を用い、高融点無機化合物粉末の融点よりも高い最高加熱温度を有する量産炉を用いて量産し、ユーティリティー、炉部材（ヒーターや絶縁体など）が、性能面でゆとりを持つようにするのがよい。なお、最高加熱温度とは加熱手段により炉心管を加熱し得る最高の温度とする。

【0045】炉本体は、加熱効率の向上及び制御パネルなどの周辺機器の保護を図るために前記加熱手段の発熱を周囲に散逸させることを防止することが好ましく、例えば徐熱帯、加熱帯、徐冷帯にわたって炉本体の内部と外気の間を断熱する断熱材を備えることが好ましい。

【0046】この断熱材は、例えばアルミナ（ $\text{Al}_2\text{O}_3$ ）、ハフニア（ $\text{HfO}_2$ ）、マグネシア（ $\text{MgO}$ ）、ジルコニア（ $\text{ZrO}_2$ ）等の酸化物材料やこれらを複合してなる耐熱材料、とりわけ、2000℃を超える高温でも高い絶縁性を有する高絶縁性耐熱材料で構成した耐熱レンガや耐熱セラミックスが用いられる。

【0047】上記以外の耐熱材としては、 $\text{AlN}$ 、 $\text{TiN}$ 、 $\text{ZrN}$ 、 $\text{HfN}$ 、 $\text{TaN}$ などの窒化物、 $\text{B}_4\text{C}$ 、 $\text{Mo}_2\text{C}$ 、 $\text{SiC}$ 、 $\text{WC}$ 、 $\text{W}_2\text{C}$ 、 $\text{HfC}$ 、 $\text{NbC}$ 、 $\text{TaC}$ 、 $\text{TiC}$ 、 $\text{ZrC}$ などの炭化物、 $\text{TiB}_2$ 、 $\text{WB}$ 、 $\text{HfB}_2$ 、 $\text{ZrB}_2$ などのホウ化物、炭素や炭素の同位体、 $\text{Hf}$ 、 $\text{Ir}$ 、 $\text{Mo}$ 、 $\text{Nb}$ 、 $\text{Ta}$ 、 $\text{Re}$ 、 $\text{W}$ などの2000℃～4000℃の範囲内に融点を持つ金属性耐熱材料や、上記耐熱材が組み合わせて用いられることもある。

【0048】ところで、炉本体からの放熱は、やけどや、炉周囲に配置した電子機器の熱による誤動作や、ビ

ニール被覆コードの融解による配線ショートなどの事故やトラブルを招くおそれがある。

【0049】そこで、炉本体、特に冷却部を水冷ジャケットで覆うことが推奨される。例えば金属パイプやジャケットの中に水を循環させる構造にするなどして、炉本体の外周部を冷却することが推奨されるのである。

【0050】なお、ヒーターと断熱材の間、あるいは、断熱材と水冷ジャケットの間には、熱遮蔽を目的とした複数の熱反射板が設けられる場合もある。

10 【0051】炉本体からの無機化合物粉末及びキャリアを取り出す際に外気が炉心管に流入することを防止するために炉心管の下端に切り出し室が設けられる。

【0052】前記切り出し室は、例えば、その入口ないし内部に炉心体の下端開口を開閉するスライドシャッターからなる切出装置を備え、また、その底部より下方に連出され、粉体遮断弁で開閉される粉体抽出口を備える。粉体遮断弁を閉じて切出装置を開くことにより無機化合物及びキャリアを切り出し室に落下させてから、切出装置を閉じ、この後、粉体遮断弁を開くことにより、20 切出装置により切り出し室内に切出された無機化合物粉末が粉体抽出口から排出されるようにする。

【0053】なお、省電力化を図るために、粉体の受入ホッパーへの投入、フィーダー室への粉体の移送、炉心管の内部における化合物原料の加熱処理、炉本体からの無機化合物粉末の切り出し作業などを全自動化することが好ましい。

【0054】上記キャリアは、最高炉室温度よりも融点が高い素材で構成することが好ましく、好ましくは炉心管と同等の素材で構成されるが、最低限、製造する無機化合物粉末よりも融点が高い素材で構成すればよい。すなわち、耐熱性が高く、流動性の良好なセラミックス、白金などの金属、カーボンなどでキャリアを構成する。

【0055】また、キャリアは、加熱合成により得た無機化合物の焼結体を炉心管内で破碎しながら自重落下するのに適した形状を備えていればよいのであるが、塊状、球状等を採用すると、取扱や入手が容易になるので有利である。例えばセラミックス塊やセラミックス球は、取扱が簡便であり、市販もされているので入手が容易である。

40 【0056】特に、セラミックス球体（酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化ジルコニウム、酸化イットリウム、酸化シリコン、窒化シリコン、炭化シリコン、目的とする蛍光体粉末、これらの混合体などを材質とした球体）ないし擬球体は流動性がより良好であるのでいっそう好ましい。最も好ましくは99.8%以上の純度を有する高純度のアルミナボール、アルミナビーズや、さらには、目的とする無機化合物粉末（蛍光体粉末）で少なくとも表面の一部分を構成した球体である。

50 【0057】また、上記アルミナボールやアルミナビーズなどの上記セラミックス球体の寸法は、中心粒径が1



0  $\mu$ m以上100mm以下、好ましくは30  $\mu$ m以上60mm以下、最も好ましくは1mm以上10mm以下の範囲内になるようにするのがよい。上記条件に当てはまる商品の具体的な例としては、 $\phi$ 1~60mmのセラミックス球体（例えば、（株）ニッカトー製）から選択すると入手が容易になるので好ましい。

【0058】さらに上記キャリアとして、例えば、アドバンストアルミナ（住友化学工業（株）製）のような高流動性粉末（例えば、中心粒径5、8、10、18  $\mu$ m）を用いるのも好ましい。該アドバンストアルミナは、実質的に破砕面を持たない単結晶の、しかも粒径が揃った酸化アルミニウムであり、粒径を精密制御した、高充填性、易分散性、高焼結性などの特徴を有している。

【0059】また、前記セラミックス塊やセラミックス球体などからなるキャリアは、炉心管いっばいに充填するのが好ましく、常に炉心管内を上記キャリアで充填したままで、該キャリアが化合物原料とともに炉心管内を流動落下するようにして、キャリアを化合物原料とともに炉心管内を流動落下させながら、蛍光体粉末などの無機化合物粉末を加熱合成するのが好ましい。

【0060】さらに、白金などの金属やカーボンのような高融点導電体からなるキャリアを用いると、高周波誘導により発熱させて、ヒーターの機能を十分発揮させることができるという利点が得られる。また、この高融点導電体以外のセラミックスからなるキャリアでも、抵抗体であることには変わりがないので、高周波誘導によって発熱させ、ヒーターとしての機能を発揮させることが可能である。この場合、上記高融点導電体は流動性の点から球体であることが好ましい。

【0061】なお、前記キャリアは、加熱合成された無機化合物を破砕して粉末にするのに適した形状をしているので、焼成後の無機化合物を解砕する解砕装置のメディア、例えばボールミルのボールとして利用することができる。また、無機化合物粉末と分離した後、炉心管の投入口に再投入して再利用することが好ましい。もちろん、キャリアをメディアとして解砕装置に仕込んだり、解砕装置から取り出したり、さらに、無機化合物粉末と分離した後、炉心管の投入口に再投入したりする作業を自動化することが好ましい。

【0062】なお、本発明の上記無機化合物粉末の製造方法にあつては、実績があるシャフト型連続炉を用いるのが好ましいが、この他に垂直引下げ炉を用いることも可能である。

#### 【0063】

【発明の実施の形態】以下、本発明にかかる無機化合物粉末の製造方法の一実施例を図面に基づいて説明するが、これに先立って本発明の原理を説明することにする。

【0064】図1の原理図に示すように、本発明では、

縦軸（傾斜軸でもよい。）の炉心管1に微粉末状の化合物原料2と、粉末状ないし粒状のキャリア4とを投入する。炉心管1の下端開口を開閉するスライドシャッター5により、その下端開口を閉じて、前記化合物原料2とキャリア4とを炉心管1からこぼれないように、炉心管1内に充填させる。炉心管1の周囲に配置した加熱装置6により、キャリア4とともに炉心管1内に投入した化合物原料2を加熱することにより、化合物原料2が加熱合成されて無機化合物3になる。

【0065】前記シャッター5を開くと炉心管1内の化合物原料2、無機化合物3及びキャリア4は自重で下方に移動し、上記炉心管1内の下部に位置するキャリア4及び、既に加熱合成された目的とする無機化合物3が落下する。もし、炉心管1内で無機化合物3が大きな塊として焼結していても、キャリア4が衝突したり、互いに衝突するキャリア4に挟まれたりして、解砕あるいは破砕され、無機化合物3の焼結によって炉心管1が詰まることはない。また、無機化合物3は、キャリア4と衝突したり、互いに衝突するキャリア4に挟まれて、解砕あるいは破砕されることにより微粉末になる。

【0066】本発明に係る好ましい形態では、適量のキャリア4及び無機化合物3が炉心管1から排出されると、該排出による減量に見合う化合物原料2とキャリア4が炉心管1に追加的に投入され、炉心管1から排出された無機化合物3とキャリア4とは、例えばふるいにかけて分離され、分離されたキャリア4は再利用される。なお本発明は、上記排出による原料に見合う化合物原料2とキャリア4を炉心管1に追加的に投入しないバッチ処理の形態であっても構わない。

【0067】ここで、前記化合物原料2は、無機化合物粉末3を製造するための原料であり、例えば、アルカリ土類金属化合物、亜鉛化合物、硼化合物、アルミニウム化合物、希土類化合物、マンガ化合物、酸化合物、窒化合物、硫化合物、ハロゲン化合物、これらの複合化合物など、あらゆる化合物、とりわけ化合物粉末の中から、目的とする無機化合物粉末にあわせて、種類や量などが適宜選ばれる。

【0068】キャリア4は、炉心管1の管内に投入した化合物原料2をスムーズに流動落下させるための物質であり、塊状物質や球体や流動性の良好な粉体などから選ぶが、好ましくは、セラミックス球体にする。尚、キャリア4は、図1に示すように、炉心管1の管内いっばいに充填するのが好ましい。また、重量比にして、化合物原料2/キャリア4=0.001以上1未満、好ましくは0.01以上0.5以下である。これよりも化合物原料2の重量割合が多いと、炉心管内で加熱合成された無機化合物粉末3が凝結体を形成しやすい。一方、これよりも化合物原料2の重量割合が少ないと、化合物原料2の割合が少ないために、無機化合物粉末3の形成量が少なくなり、製造効率が悪くなる。

【0069】加熱装置6は、無機化合物粉末3の合成を目的として、炉心管1の管内の化合物原料2を加熱するためのものであり、各種電気ヒーター、ガス炎や熱線の発生装置、高周波誘導加熱装置など、あらゆる加熱装置や加熱手段を用いることができる。

【0070】なお、炉心管1内の雰囲気については特に限定されるものではなく、酸素雰囲気（大気中）還元雰囲気、不活性ガス雰囲気、窒素雰囲気、硫化水素などの硫化ガス雰囲気、これらの減圧雰囲気、真空雰囲気など、あらゆる雰囲気から選ばれる。

【0071】また、炉心管内の加熱温度などについても特に限定されるものではなく、無機化合物粉末が合成され得る温度であればよく、例えばアルミネート蛍光体粉末を合成する場合には、アルミネート蛍光体粉末の融点が1800℃以上の高融点無機化合物粉末であるので、該アルミネート蛍光体粉末を製造する際には、最高加熱温度が1800℃よりも高い装置を用いると、ユーティリティー、炉部材が、性能面でゆとりを持つようになるので好ましい。加熱装置の電力効率や製造され得るアルミネート蛍光体粉末（高融点無機化合物粉末）の性能や品質などを考慮すると、好ましい上記最高加熱温度は1900℃以上3500℃以下である。

【0072】こうした最高加熱温度は、例えば、ケラマックスヒーターやジルコニウムヒーターやカーボンヒーターなどの電気ヒーターを使用した装置、あるいは、高周波誘導加熱法によって実現可能であるが、これ以外の電気ヒーターを用いても、これら以外の方法を用いても構わない。

【0073】製造できる無機化合物粉末3としては、先に、説明したような、あらゆる無機化合物粉末（セラミックス材料など）があり、蛍光体粉末、とりわけアルミネート蛍光体粉末もこれに含まれる。

【0074】次に、シャフト型連続炉を用いる本発明の一実施例を図面に基づいて具体的に説明する。

【0075】まず、図2の縦断面図に示すシャフト型連続炉の受入ホッパー29の出口側（下側）の弁34を閉じた状態で、この受入ホッパー29の投入口側（上側）の弁34を開き、投入口33からこの受入ホッパー29に蛍光体原料からなる化合物原料2とキャリア4との混合物2+4を投入する。この後、投入口側の弁34を閉鎖してから、受入ホッパー29内を減圧して、脱気をする。

【0076】脱気が済むと、出口側の弁34を開き、フィーダー30、フィーダー室31を経て炉心管1に前記混合物2+4を投下し、再び出口側の弁34を閉じてから、フィーダー室31及び炉心管1内の雰囲気を調整する。

【0077】以上の操作を必要な回数にわたって繰り返して、炉心管1内に前記混合物2+4を充満させ、予め始動させていた加熱装置27により加熱帯23を中心にし

て前記混合物2+4を加熱する。加熱を続けながら、所定の周期で、切出装置36で炉心管1の下端を開閉すると、切出装置36を開くたびに炉心管1内の混合物2+4が下方に自重落下する。なお、自重落下により炉心管1から排出された量に見合う量の混合物2+4がフィーダー室31から炉心管1に補充され、炉心管1内は常に混合物によって満たされているようにしている。

【0078】上記混合物2+4は、炉心管1内を上から下に移動する間に徐熱帯22から加熱帯23で常用加熱温度1600℃以上2500℃以下程度（最高加熱温度は1900℃以上3500℃以下）で加熱され、化合物原料2は加熱合成されて無機化合物3になる。この無機化合物3は焼結して粒径が大きくなるが、キャリア4の間の隙間より大きく成長することはない。そして、切出装置36を開いた時に自重落下するキャリア4に押し流され、キャリア4と衝突したり、キャリア4の間に挟まれたりして破碎されながら徐冷帯24、冷却帯25を下りて行くので、無機化合物3は粒径の均一な微粉体になり、キャリア4との混合物3+4として炉心管1から切り出し室32に排出される。

【0079】つまり、縦軸の炉心管1を用いると原料の流動性が悪いので加熱合成された無機化合物3が焼結して炉心管1を詰まらせていたのに対し、キャリア4を用いることにより焼結が抑制され、さらに焼結した無機化合物3がキャリア4によって押し流されながら、解砕もしくは破碎されるので、炉心管1が詰まることがなくなり、縦軸の炉心管1で流動性の悪い蛍光体を、高温処理して得られるようになったのである。

【0080】なお、炉心管1から切り出し室32に排出された混合物3+4は、切出装置36で炉心管1の下端を閉じている間に粉体遮断弁38を開くことにより、切り出し室32から粉体抽出口37を経て排出される。

【0081】また、排出されたキャリア4は、例えばふるいにかけて無機化合物粉末3と分離され、この後、受入ホッパー29、フィーダー30及びフィーダー室31を経て、炉心管1に再投入し、繰り返して使用される。

【0082】

【発明の効果】以上説明したように、本発明の無機化合物粉末の製造方法によれば、化合物原料に流動性のよいキャリアを添加することにより、炉心管内で無機化合物が大きく焼結することを防止し、炉心管内で自重落下、転動等のキャリアの動きを利用して焼結した無機化合物を解砕または破碎するので、焼結して縦軸または傾斜軸の炉心管を詰まらせるような流動性の悪い無機化合物、とりわけ蛍光体（特にアルミネート蛍光体）の粉末を炉心管で量産できる効果が得られる。

【0083】しかも、無機化合物がキャリアによって解砕または破碎されるので、分散性が良好で、粒度分布がシャープな無機化合物粉末を得ることができる。

【0084】また、高融点無機化合物粉末の融点よりも

高い最高加熱温度を有する量産炉を用いて量産することができ、これにより、ユーティリティー、炉部材（ヒーターや絶縁体など）に性能面でゆとりをもたせて、炉本体、炉心管、ヒーターなどの量産炉を構成する部材の消耗や破損の頻度、ならびに、メンテナンスの頻度を大幅に低減できる効果を得ることができる。

【0085】さらに、高融点無機化合物粉末の融点よりも高い最高加熱温度を有する量産炉を用いて量産することにより、電力効率を高めることができ、小型、コンパクトで、キャリアのリユースにより排出物を少なくし、環境への負荷を小さくすることができる効果も得ることができる。

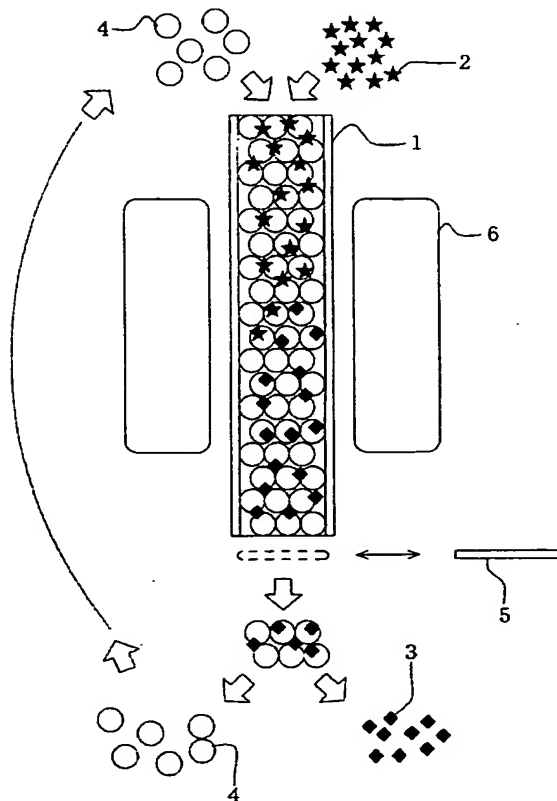
#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の原理図である。

【図2】シャフト型連続炉を用いる本発明を説明する縦断面図である。

【図3】トレイブッシャ型連続炉を用いる従来例を説明

【図1】



する横断平面図である。

【図4】従来例に用いるトレイブッシャ型連続炉の縦断面図である。

【図5】垂直引下げ炉を用いる従来例を説明する縦断面図である。

【図6】従来例に用いる垂直引下げ炉の要部の縦断面図である。

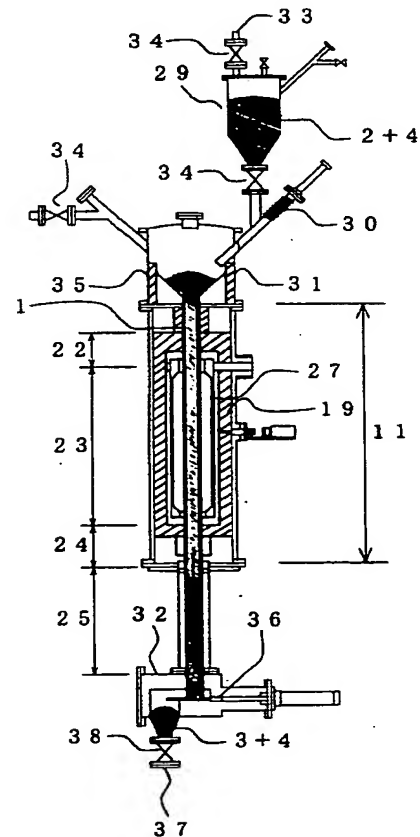
【図7】従来例に用いる垂直引下げ炉の要部の横断平面図である。

【図8】シャフト型連続炉を用いる従来例を説明する縦断面図である。

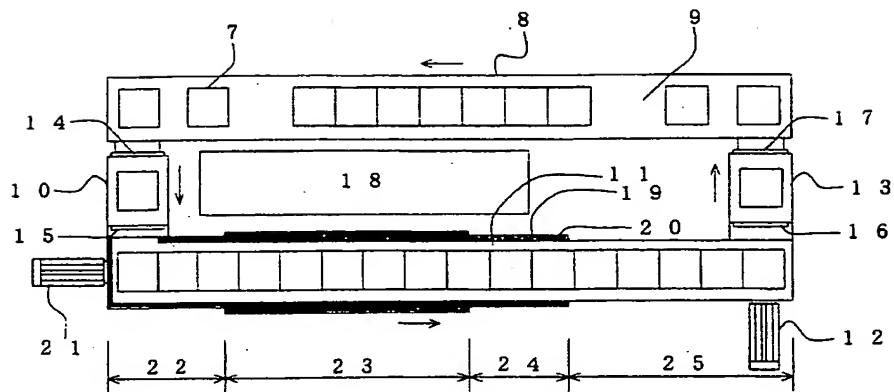
#### 【符号の説明】

- 1…炉心管
- 2…化合物原料
- 3…無機化合物粉末
- 4…キャリア

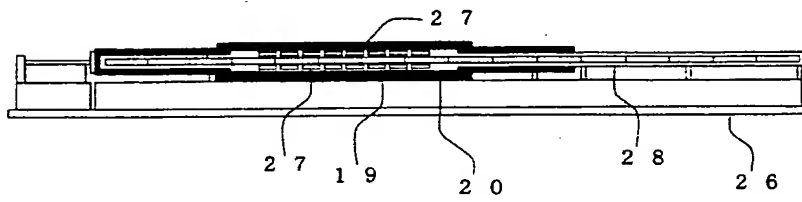
【図2】



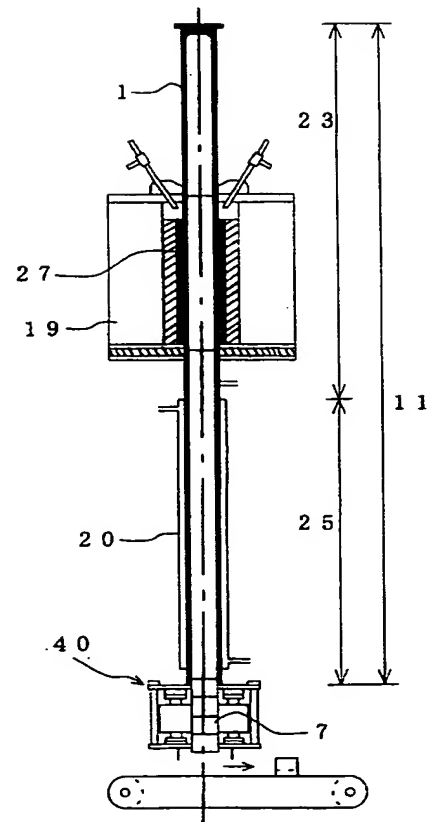
【図3】



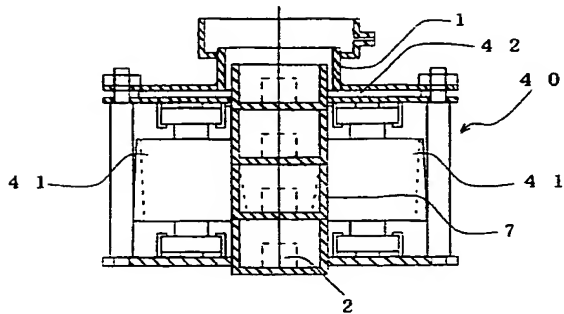
【図4】



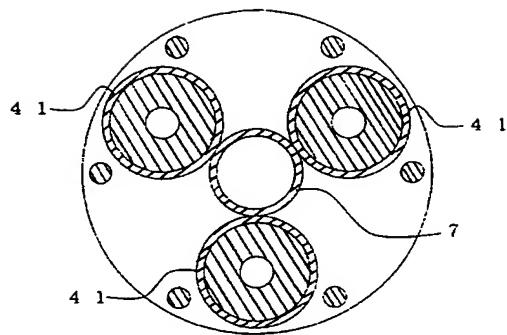
【図5】



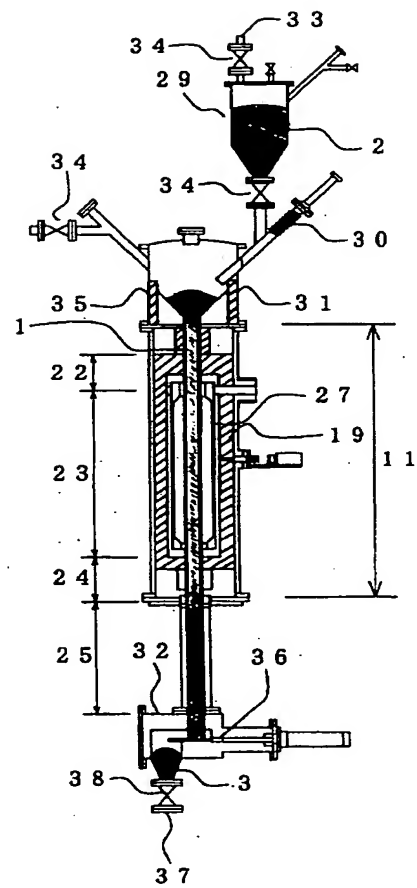
【図6】



【図7】



【図8】



フロントページの続き

F ターム(参考) 4G030 AA07 AA36 AA37 BA14 GA01  
GA23 GA27 GA31  
4G075 AA27 AA45 AA62 AA63 BA05  
BB03 BD03 BD11 CA02 CA25  
CA52 FB04 FC07  
4G076 AA02 AA18 AB02 BA38 CA02  
DA11  
4H001 CA01 CF02 XA08 XA12 XA13

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ ~~FADED~~ TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**